

10 eV 領域での電荷移行反応の 微分断面積測定

課題番号：06640530

平成7年度 科学研究補助金 一般研究（C）

研究成果報告書



平成8年3月

研究代表者 伊藤 陽

(城西大学 理学部 助教授)

10 eV 領域での電荷移行反応の 微分断面積測定

課題番号 : 06640530

平成7年度 科学研究補助金 一般研究 (C)

研究成果報告書

平成8年3月

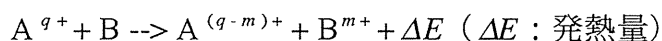
研究代表者 伊藤 陽

(城西大学 理学部 助教授)

は し が き

この報告書は、平成6年度・7年度の2年間にわたって行われた、文部省科学研究補助金 一般研究(C)「10 eV 領域での電荷移行反応の微分断面積測定 (課題番号:06640530)」の研究成果報告書である。

これまで、イオンと原子・分子衝突に於ける非弾性反応の理解の為、断熱ポテンシャル曲線と、それらの交叉点近傍での遷移確率について知見を得るために、研究例の少ない10eV以下のエネルギー領域でビーム法を用い、多価イオンの関与する電荷移行反応:



を対象としての実験装置建設・研究を進めてきた。

今回の補助金を用いることで、既存の交叉ビーム装置に電子ビーム型イオン源 (EBIS) を新たに設計・製作し、ビーム実験がほとんど行われていない低エネルギー領域での測定を開始する事ができた。しかし、散乱実験に用いることのできたイオンビーム強度は十分ではなく、今後より検出効率を向上させた検出器の必要性も認識された。以下に、研究経過と到達点を述べる。

研究組織

研究代表者: 伊藤 陽 (城西大学理学部助教授)

研究分担者: なし

研究経費

平成6年度	1,200 千円
平成7年度	800 千円
計	2,000 千円

研究発表

伊藤 陽 10 eV 領域での多価イオン衝突実験 (現状報告) 1pT6
日本物理学会 平成8年4月1日

1. 序

イオンと原子・分子衝突に於ける電荷移行反応の機構解明のために、最近特に低エネルギー領域での微分断面積測定が注目されつつある⁽¹⁾。これまでに報告された測定としては

- (1) $C^{4+} + He \rightarrow C^{2+} + He^{2+}$ 系で量子論的な干渉効果が微分断面積に観測され、これらはシュテュッケルベルク型の振動構造と同定された⁽²⁾。また、
- (2) エネルギー分解能はまだ低い $Ar^{4+} + Ar$ 系で 20 eV の衝突エネルギー領域での 1 電子・2 電子移行過程についての二重微分断面積の測定が開始されていること⁽³⁾、

(3) $Ar^{6+} + He$ 系での 2 電子移行過程の二重微分断面積測定($E_{cm} = 55 - 110$ eV)⁽⁴⁾などがあげられよう。

この手法が注目されているのは、例えば、電子相関に基づく二電子同時移行過程であるのか、連続した2回の一電子移行過程によるものなのかの議論が行われている二電子移行過程の反応機構の解明には、従来行われてきた反応の始状態・終状態の分析のみでは不十分で、反応経路を直接に反映する散乱角度測定（微分断面積測定）が必要であるからである。Andersson らは⁽⁴⁾ $Ar^{6+} + He$ 系での 2 電子移行過程の微分断面積測定において、前方方向と散乱角度の大きな所に構造があることを見だし、multi-channel Landau-Zenner 計算結果との比較より、前方方向の構造が二電子同時移行過程に対応し、また、散乱角度の大きな所の構造が連続した2回の一電子移行過程によるものであることを明らかにした。

本研究では多数の衝突系について、より低エネルギー領域での測定を目標とした。10 eV 領域の低エネルギー衝突を研究対象とする理由は、

- (1) この領域でのビーム実験がほとんど行われていない、
- (2) 散乱現象の相互作用ポテンシャルの形状依存性が衝突エネルギーの低下と共に顕著となり、その効果が明確に微分断面積に反映されること、
- (3) 量子論的な干渉効果の観測が期待されること、
- (4) 主な遷移機構はエネルギーの低下とともに純粋な動径結合になり、このモデルに基づいた理論結果との比較することにより実験結果の解析が詳細に行なえる、

等である。また、実験技術的にも、このエネルギー領域での微分断面積測定は、低

エネルギービームの強度に起因する技術的困難より、非常に挑戦的な試みともされている。

このために、本研究では、従来の装置に

(a) 電子ビーム型イオン源 (Electron Beam Ion Source: EBIS), と

(b) 高感度の位置敏感型検出器

を設置し、これまで実験的困難さ故にあまり測定されていない衝突系・エネルギー領域での電荷移行反応について、測定の範囲を拡大することを目指した。その結果、(a) についてはほぼ満足のいく結果が得られたが、(b) については設計を開始するところまでしか到達できなかった。

2. 実験装置

2-1. 交叉ビーム法実験装置

これまで電子衝撃型イオン源 (Nier 型) によりイオンを生成し、超音速ノズルビームを標的とする交叉ビーム法実験装置を製作し、段階的にその性能評価を行ってきた。エネルギー幅の狭い低エネルギービーム発生方法・その操作方法を主にした実験手法の確立と、電荷移行反応の機構解明のために、

(i) Ar^{2+} - He 系で掃引型エネルギー分析器を用いた終状態決定⁽⁵⁾,

(ii) He^+ - He 系における弾性散乱微分断面積に現れる量子論的干渉効果の測定⁽⁶⁾,

(iii) Ar^{2+} - Ne 系での一電子移行過程の全微分断面積測定⁽⁶⁾

などを行ってきた。

用いた実験装置を図 1 に示した。実験装置は、電子衝撃型イオン源・Wien-filter 型質量選別器・2 連半球型エネルギー選別器・超音速ノズルビーム・イオン検出器より構成されている。

電子衝撃型イオン源を用いることにより、希ガス 1 価イオンについては、およそ 3×10^{-10} A 程度、希ガス 2 価イオンについては 3×10^{-11} A 程度のビームを衝突領域まで導くことが可能であった。しかし、それ以上の価数のイオンや、分子からのフラグメントイオンなどを十分な強度で生成することはできなかった。

これらのビームは、エネルギー選別器を $20 * q$ eV (q : 価数) で通過させたため、そのエネルギー幅は $0.1 * q$ eV 程度と見積もられている。ビームの発散角度は半値幅で $\pm 0.5^\circ$ であった。このビームと、図 2 に示した簡単なイオン検出器を用い、上記の測定を行った。このイオン検出器の角度分解能は、115 mm 離して設置された

2個の直径1mmの穴により決まる $\pm 0.5^\circ$ であり、3枚のグリッドで構成されるエネルギーフィルターによって一次ビームと散乱イオンを区別して検出するものである。

標的となる超音速ノズルビームは、直径50 μm のノズルを通して約1気圧の試料気体を6インチの油拡散ポンプで排気される真空槽内へ噴出させ、直径0.8mmのスキマーを用いて標的ビームとしている。その強度は、圧力換算値でおよそ $3 \times 10^{-4} \text{ Torr}$ と見積もっている。

2-2. 予備実験

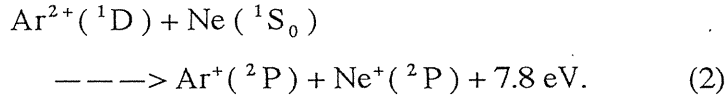
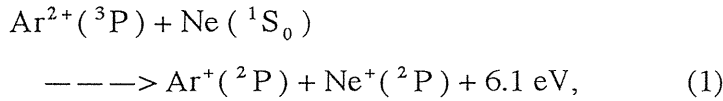
このような配置の実験装置の、微分断面積測定能力を調べるため、および衝突エネルギー校正方法確立のために、構造の良く知られている $\text{He}^+ - \text{He}$ 系における弾性散乱微分断面積を $E_{\text{lab}} = 10 \text{ eV}$ ($E_{\text{cm}} = 5.0 \text{ eV}$)で測定した。衝突エネルギーの正確な決定のため、衝突領域の後ろに設置したファラデーカップで一次イオンビーム強度をモニターしながら、それが完全に0となるまでイオン加速電圧を減少させ、その時の値とイオン源に印加した電圧との差を真の加速電圧とした。今回の測定では、この補正值は $\pm 0.1 \text{ V}$ 程度であった。

測定結果と ab initio potential⁽⁷⁾を用いたReinig とLinder⁽⁸⁾による計算結果を図3に示した。この図で、測定結果は重心系で 0.8° だけ正の方向に平行移動して表示してある。実験結果はMorse とBernstein⁽⁹⁾の方法で重心系の微分断面積に変換し、断面積の絶対値は $\theta_{\text{cm}} = 30^\circ$ 近傍で理論値に規格化した。散乱角度については測定値を実験室系で 0.4° だけ全体を移動させることで、理論計算結果と非常によく一致することがわかる。このことより、上記の方法で衝突エネルギーは $\pm 0.1 \text{ eV}$ の精度で決定できること、および、散乱角度の測定精度も $\pm 0.5^\circ$ 以下であることが判明した。

2-3. これまでに得られた結果

この装置を用いて、 $\text{Ar}^{2+} + \text{Ne}$ 系での一電子移行過程を $E_{\text{lab}} = 80 \text{ eV}$, 60 eV および 40 eV で測定した。測定に要した時間はそれぞれ1-2時間程度である。生成された Ar^+ イオンの角度分布を図4に示した。これらの図より、 Ar^+ の角度分布にはふたつの構造があることがわかる。前方方向に見られるピークと、 $E_{\text{lab}} \cdot \theta_{\text{lab}} = 290 \pm 20 \text{ eV} \cdot \text{deg}$ の所を極大とする幅広い構造とである。

Kamber ら⁽¹⁰⁾は、この系について二重微分断面積を $E_{\text{lab}} = 540 \text{ eV}$ で測定し、次の二つの反応が起こっている事・断面積は反応(1)が大きいことを報告した。



彼らの反応（１）についての微分断面積測定においても，前方方向のピークと $E_{\text{lab}} \cdot \theta_{\text{lab}} = 270 \text{ eV} \cdot \text{deg}$ を極大とする構造が観測されており，今回の我々のデータとの一致はかなり良いものと思われる．

測定されたこれらの微分断面積の構造を理解するために，古典的軌道計算を行い，測定値との比較を行った．以下の解析では，反応（１）のみを考慮している．

相互作用を表すモデルポテンシャルとしては，簡単なものを用いた．入射チャンネルには相互作用無し，

$$V_{\text{in}}(r) = 0, \quad (3)$$

とし，反応後にはクーロン反発力のみ

$$V_{\text{out}}(r) = 1/r - Q, \quad (4)$$

とした．ここで r は核間距離， Q は発熱量である．また，一電子移行過程について二つの古典軌道を考慮した．すなわち，path A: 電子移行がイオンが標的に近づきつつある時に起こる場合，および，path B: イオンが標的と離れつつある時に起こる場合，である．それぞれの軌道についてイオンの偏向角 θ_{cm} を計算し次の式を用いて微分断面積を計算した．

$$\frac{d\sigma(\theta_{\text{cm}})}{d\Omega} = \sum_{\text{path A, B}} \left| \frac{b}{\sin \theta_{\text{cm}} (d\theta_{\text{cm}} / db)} \right| P(b), \quad (5)$$

ここで b は衝突係数， $P(b)$ はポテンシャル交叉点における遷移確率で Landau-Zener の公式を用いて評価した．

$E_{\text{lab}} = 40 \text{ eV}$ の場合の計算結果を図 5 に示した．この図より，計算結果は実験データをかなり良く再現することがわかる．この解析より，前方方向に見られる構造は path A に，角度散乱をした幅広い構造は path B に対応するものであることがわかった．この一連の測定および解析より，微分断面積測定を行うことが，反応について

の軌道の相違を明らかにするなど、詳細な機構解明を可能とすることを示すことができた。

2-4. 電子ビームイオン源(EBIS: Electron Beam Ion Source)

測定範囲・研究対象とする衝突系の拡大を可能とするため、種々の多価イオンビームを発生させることのできる電子ビーム型イオン源(Y's EBIS と命名した)を新たに建設し、既存の実験装置に接続した。これは磁場で収束した電子ビームを用い、超高真空中で電子ビームの作る空間電荷中に捕えられた試料気体イオンを逐次電離することによって多価イオンを生成するものである。EBISは一般に大型の装置となるが、今回設置したEBISは超高真空装置の外部にソレノイドを置くなどして、都立大の奥野によって開発されたmini-EBISをさらに簡便な形にしたものである。必要とされる超高真空は、ターボ分子ポンプおよび非蒸発型ゲッターポンプにより実現し、これまでの所 2×10^{-10} Torr が得られている。Y's EBIS の全体図・ソレノイドの作る磁場強度分布・Ar試料・CO 試料について得られた質量スペクトルをそれぞれ図6, 図7, 図8, 図9に示した。

この Y's EBIS により, C, N, O については1～5価イオンが, また Ar については1～8価イオンがこれまでの所得られている。運転は, イオンを連続的に引き出すモードで行っている。Y's EBIS で生成された多価イオンは 2 kV で引き出され, 静電レンズを用いてWien-filter型質量選別器に入射する前に $250 \cdot q$ eVまで減速される。質量選別されたイオンはさらにエネルギー選別器に到達するまでに, その通過エネルギー(今回は $40 \cdot q$ eV 程度)まで減速されエネルギー選別される。エネルギー選別される前のイオンビームのエネルギー幅は, 半値幅でおおよそ $0.8 \cdot q$ eVであった。

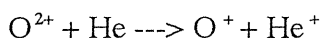
これらのレンズ系は SIMION というシュミレーションコードを用いて最適化をはかった。このシュミレーションで特に注意した点は, 衝突槽に標的気体を導入してもイオン源の真空度を保つためにイオン源部と衝突槽の間に設置した内径 5 mm 長さ50mmの差動排気筒内をイオン強度を落とさずに輸送する事であった。シュミレーションで決定した電位配置と実際との一致はかなり良く, 設計通りに動作しているものと思われる。

質量分析した直後のイオン強度は, O^{2+} , O^{3+} については0.1 nA 程度であったが, エネルギー選別・コリメートし, 更に10 eV 領域まで減速すると, 実験に用いることのできるビーム強度は 1 pA 程度まで減少してしまう。しかしこの強度は, 同種の実験に於いて多く使われている, 加速器を用いた反跳イオン源によって生成される

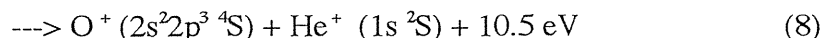
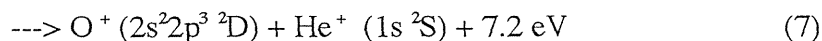
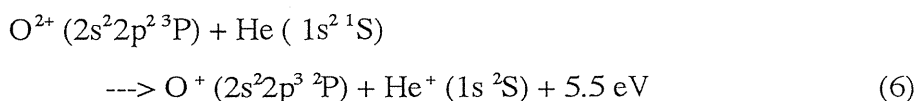
ビームの強度と同程度かそれ以上であり，Y's EBIS により低エネルギー多価イオン衝突実験が小規模の施設でも可能となったことの実験的な意義は大きい．また，一般にEBIS によって得られたイオンビームは，その内部状態がほとんど基底状態にあることが知られており，この点も反跳イオン源を用いた実験よりも優れていると言える．

3. 測定結果

3-1. 対象とした $O^{2+} + He$ 系での一電子移行過程について



で表される電荷移行反応は，実用的な意味では，地球の電離層や火星・金星の大気中での O^{2+} の崩壊過程，準安定状態の O^{+*} や， He^{+} の供給源として注目されている．この反応を電子状態を区別すると，以下のチャンネルが考えられる．



Dalgarno らは⁽¹¹⁾ 300K における反応係数をab initio 計算によって求めた分子間ポテンシャルを用いて理論的に求め，反応(6)が主に寄与していることを示した．また，衝突エネルギーの増加と共に反応 (7) の寄与が大きくなることが示された．Heil と Sharma⁽¹²⁾ は，同様の手法を用いて，これらの反応について重心系エネルギー 1 - 100 eV の領域での二重微分断面積を，Gargaud ら⁽¹³⁾ は熱エネルギー領域から10 keV 領域での全断面積を計算している．

これらの計算においては，動径結合が主であるとして，

入射チャンネルで形成される $^3\Sigma^{-}, ^3\Pi$,

反応 (6) で形成される $^3\Sigma^{+}, ^3\Pi$,

反応 (7) で形成される $^3\Sigma^{+}, ^3\Pi, ^3\Delta$,

反応 (8) で形成される $^3\Sigma^{-}$

の対称性を持つ分子軌道のうち、 $^3\Pi$ の対称性を持つ分子軌道間のみで遷移が起こるものとしている。すなわち、遷移則分子軸方向の角運動量・反転対称性・スピンをそれぞれ保存するという動径結合での遷移則を満足するものとなっている。

実験的には数 keV での測定は多くあるが、実験室系でのエネルギーが100 eV 程度で行われた微分断面積測定の結果は Kamber ら⁽¹⁴⁾ によってのみ報告されている。Kamber らは反跳イオン源と位置敏感型検出器を組み合わせ、前方方向での生成イオンのエネルギー分析とエネルギー分析を行わないでの全散乱イオンの角度分布測定を行った。その結果、測定したエネルギー範囲内では、反応(6)が主であることがわかり、理論結果を支持した。しかし、彼らの測定したエネルギー領域で直接に比較できる理論結果はなく、その振る舞いはまだ実験的には明らかにされていない。

本研究では、Y's EBIS により得られたOの2価イオンビームを用いて、Heil と Sharmによって計算された結果(図10)と直接に比較することのできるエネルギー領域での測定を行った。Heil と Sharma によれば、図10に見られる構造は反応(6)と反応(7)が共に一電子移行過程に関与しているためであるとされており、単純なシュテュッケルベルク型の振動構造とは異なるものである。しかし、Kamber 等の測定では、この系における一電子移行過程の反応の選択性はかなり高いことが示されており、この意味でも理論値と直接に比較できるエネルギー領域での測定は重要である。

3-2. 測定結果および考察

実験は 2-2. 予備実験の項で述べた方法を用いた。衝突エネルギーの決定方法も同様であるが、電子衝撃型イオン源とY's EBIS の実験的なパラメータに大きな相違点があった。電子衝撃型イオン源を使用した場合には、イオン源への印加電圧と実際の衝突エネルギーとの間に大きな差がなかったのに比べ、Y's EBIS の場合には補正值がおよそ6-8 V と大きく、これ以上の正の電圧を印加しないと衝突領域へビームを輸送できなかった。また、この値が価数依存性を持っていることもわかった。これは、磁場により強く収束された電子ビームの作る負の空間電位内でイオンが生成されるためであり、また、価数依存性を持つことから、価数の異なるイオンの生成される場所が別であることが想像される。

今回の測定では生成イオンのエネルギー分析を行っていないので、残留ガスとの衝突で生成されるノイズを除くために、標的である超音速ノズルビームが出ている

状態での測定値から、測定状態と同じ圧力まで試料気体を別ガス導入系より衝突槽に一樣に導いた状態での測定値、を差し引いた。この測定に用いたイオン検出器は、図2に示したものである。実験室系エネルギー50 eV（重心系エネルギー 10 eV）で得られた結果を図11に示した。測定ステップは 0.1° ごとに行い、データは各チャンネルごとに総計100秒間蓄積した。

得られたデータは、前方方向の構造と、散乱角度 2° 近傍の構造とを示しているが、微弱なイオンビームを用いているため、統計精度はまだ十分に向上させることができていない。特に 0° 近傍のノイズを差し引くことが難しく、今回の測定での前方の値の誤差が大きいと思われ、この構造の真偽は定かでない。散乱角度 2° 近傍の構造は、ノイズも少なくHeil と Sharma の計算結果と良い一致を示しているように思える。より詳細な比較を行うために、今後、統計精度を向上させた測定を行うことが必要である。

4. 今後の計画

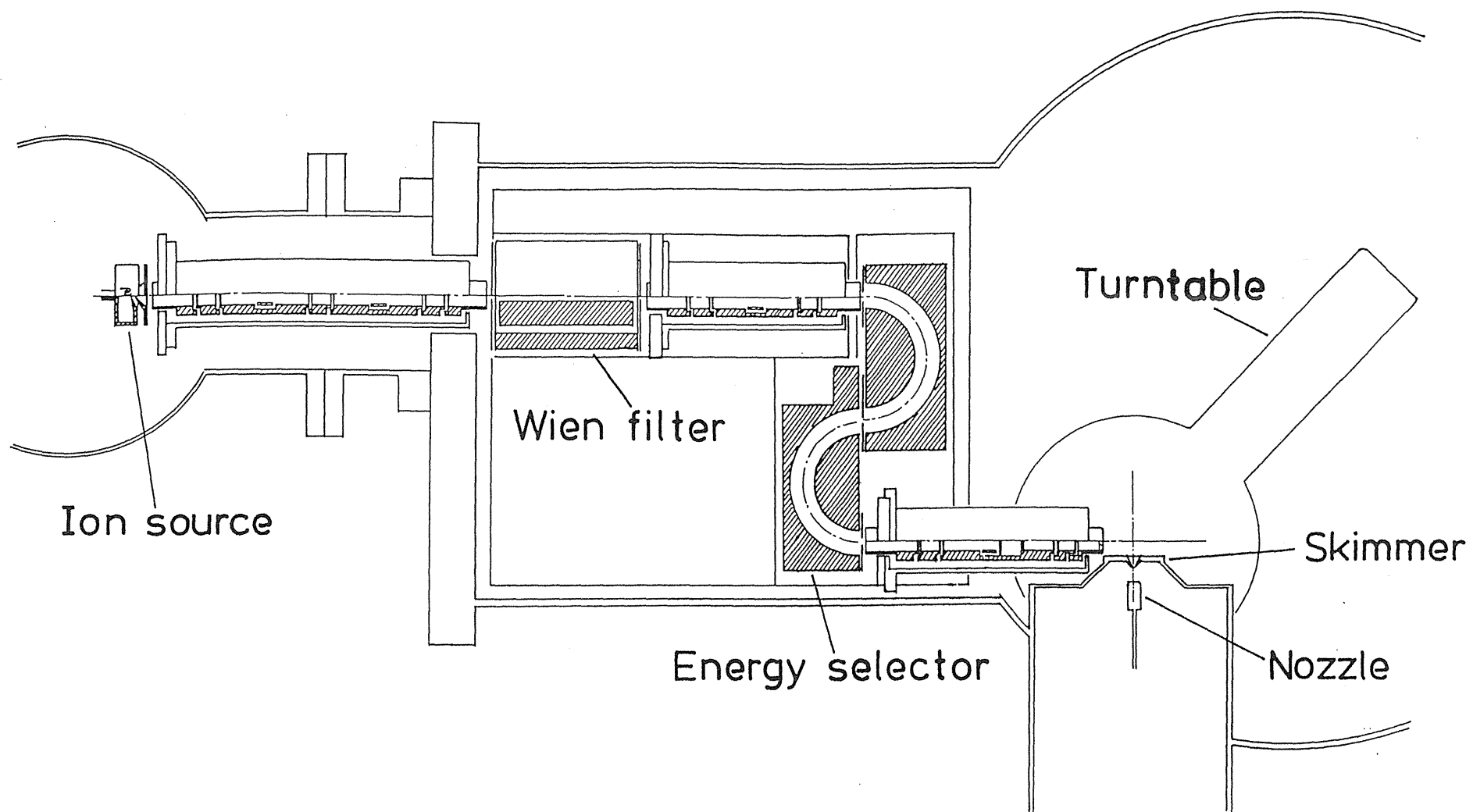
本研究において、実現が困難視されている、ビーム法を用いた低エネルギー多価イオン衝突実験を小規模な実験室で開始することができた。また、従来型の検出器を用いて、 $O^{2+} + He$ 系での一電子移行過程を報告されている理論値と直接に比較する目的での測定を、不十分ながら開始することができた。今後、この実験の精度を向上させるためには、検出効率の高いイオン検出器を用いることが決定的に重要であることがわかり、マイクロチャンネルプレート（MCP）を用いた検出器の設計を開始した。この検出器は、静電的なエネルギーフィルターを MCP の前に設置した簡単な構造のもので、約 25° の角度範囲を 0.1° の分解能で測定できるものとなっている。位置検出には、連続抵抗性陰極を用いることとした。これを完成させることができれば、現在の検出器よりおよそ200倍の検出効率を持つこととなり、統計精度を大幅に向上する事ができ、より精確な微分断面積測定が可能となるであろう。

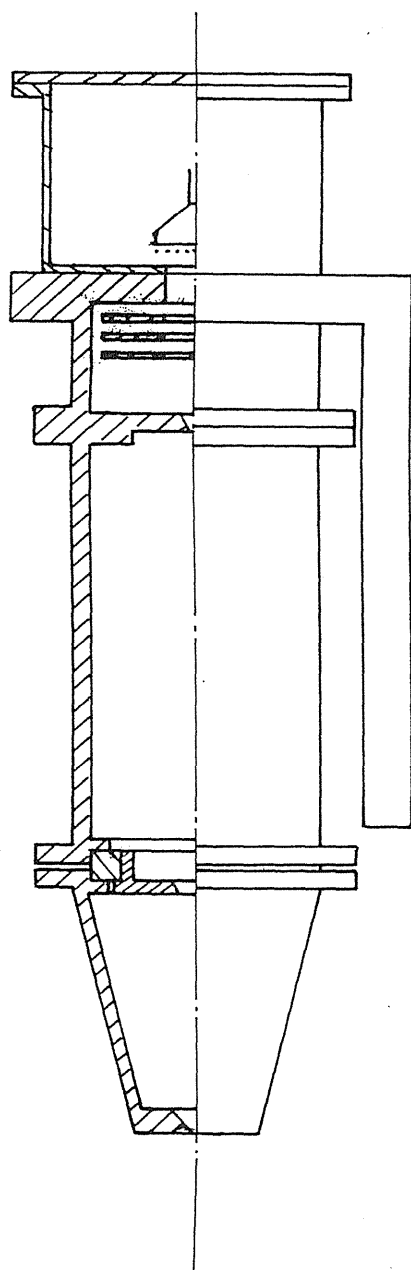
5. 参考文献

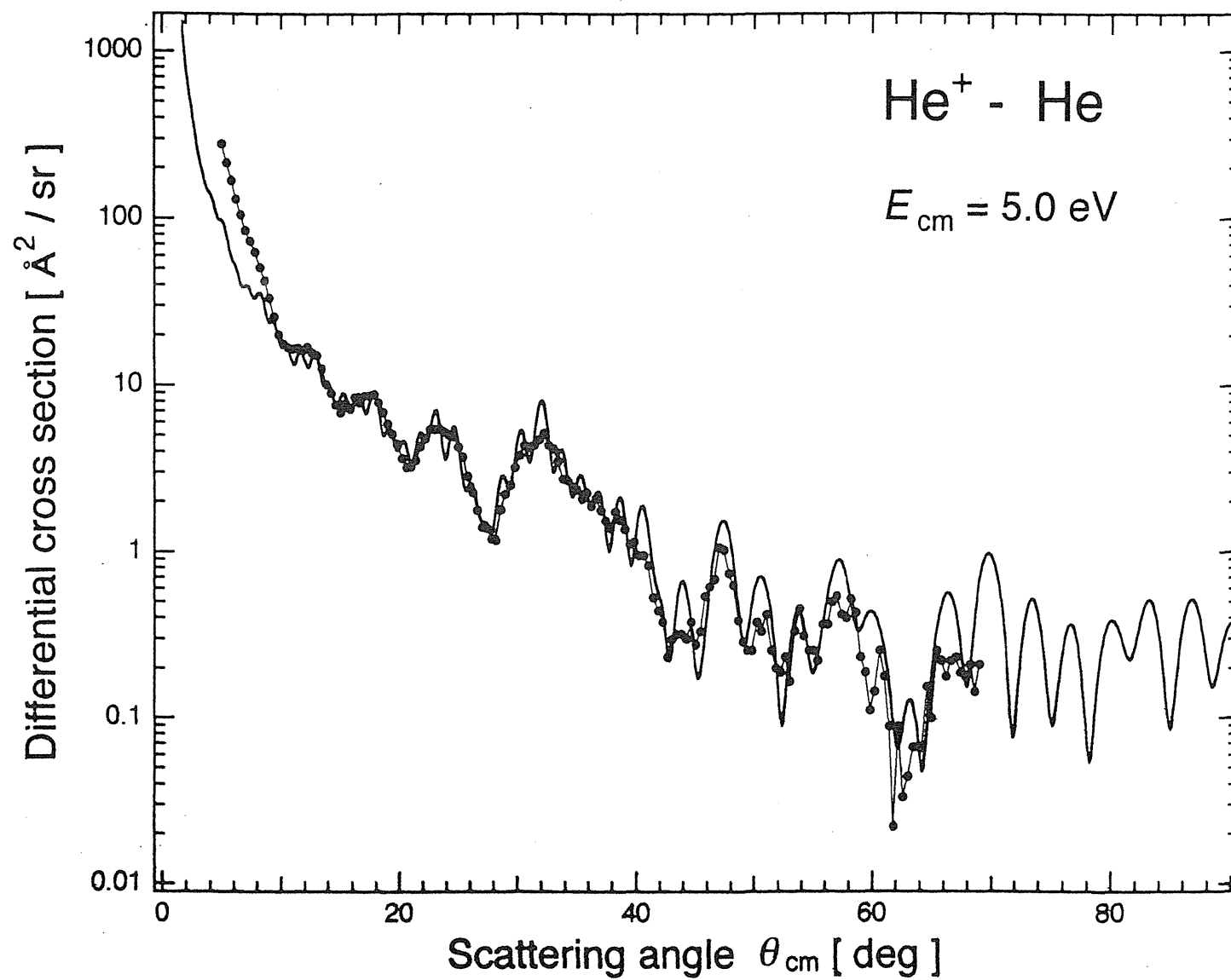
- (1) M. Barat and P. Roncin: J. Phys. **B25** (1992) 2205.
- (2) A. Bárány, H. Danared, H. Cederquist, P. Hvelplund, H. Knudsen, J. O. K. Pedersen, C. L. Cocke, L. N. Tunnell, W. Waggoner and J. P. Giese: J. Phys. **B 19** (1986) L427.
- (3) C. Biedermann, H. Cederquist, L. R. Andersson, J. C. Levin, R. T. Short, S. B. Elston, J. P. Gibbons, H. Andersson, L. Liljeby, I. A. Sellin: Phys. Rev. **A 41** (1990) 5889.
- (4) L. R. Andersson, H. Cederquist, A. Bárány, L. Liljeby, C. Biedermann, J. C. Levin, N. Keller, S. B. Elston, J. P. Gibbons and I. A. Sellin: Phys. Rev. **A 45** (1992) R4.
- (5) Y. Itoh: J. Phys. Soc. Jpn. **58** (1989) 1871.
- (6) Y. Itoh: J. Phys. Soc. Jpn. **63** (1994) 941.
- (7) A. Khan and K. D. Jordan: Chem. Phys. Lett. **128** (1986) 368.
- (8) P. Reinig and F. Linder: private communication. P. Reinig: Diploma Thesis, University of Kaiserslautern, 1983.
- (9) F. A. Morse and R. B. Bernstein: J. Chem. Phys. **37** (1962) 2019.
- (10) E. Y. Kamber, D. Mathur and J. B. Hasted: J. Phys. **B 15** (1982) 263.
- (11) A. Dalgarno, S. E. Butler and T. G. Heil: J. Geophys. Res. **85** (1980) 6047.
- (12) T. G. Heil and J. B. Sharma: Phys. Rev. **A 36** (1987) 3669.
- (13) M. Gargaud, M. C. Bacchus-Montabonel and R. McCarroll: J. Chem. Phys. **99** (1993) 4495.
- (14) E. Y. Kamber, C. L. Cocke, J. P. Giese, J. O. K. Pedersen and W. Waggoner: Phys. Rev. **A 36** (1987) 5575.

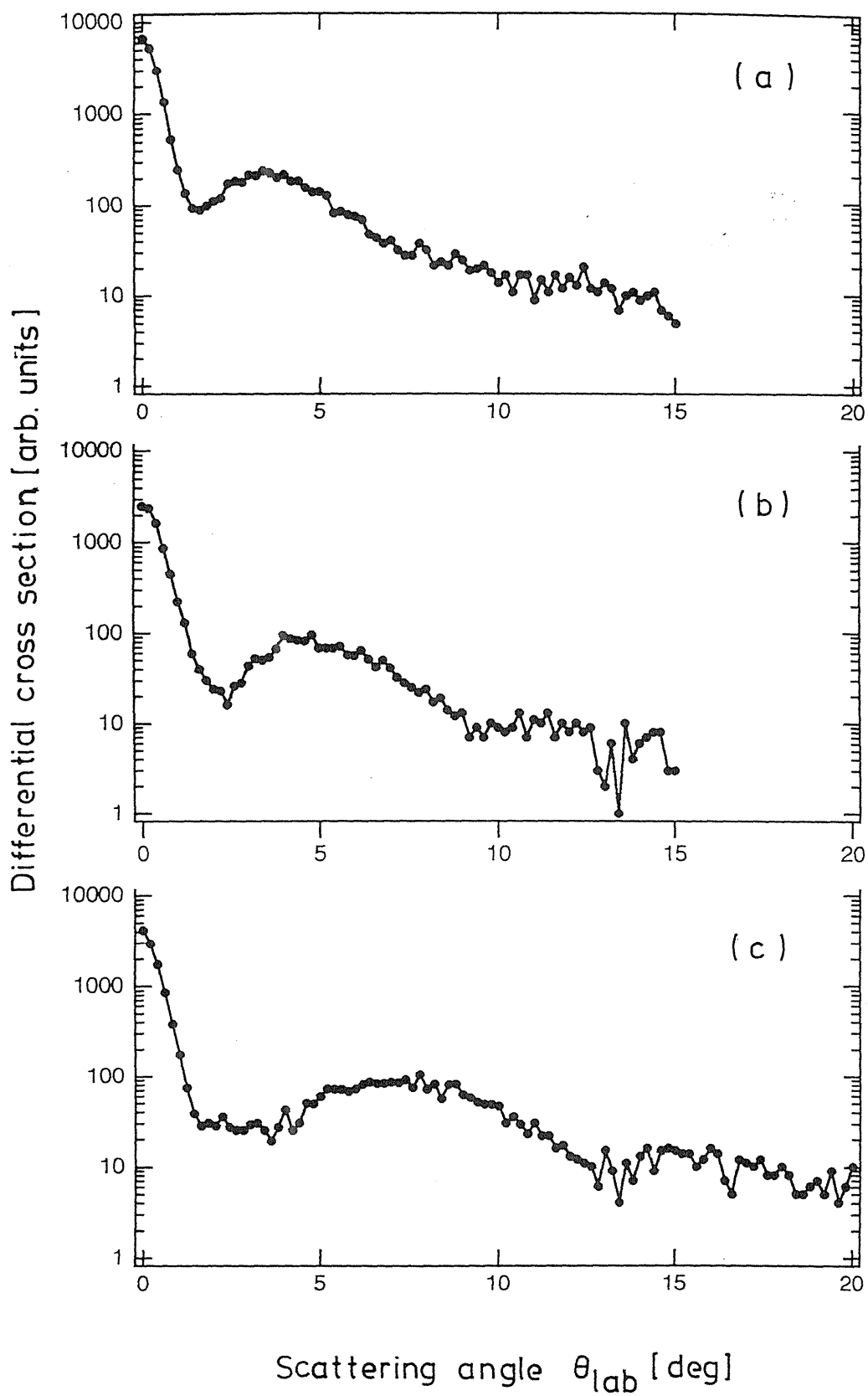
図の説明

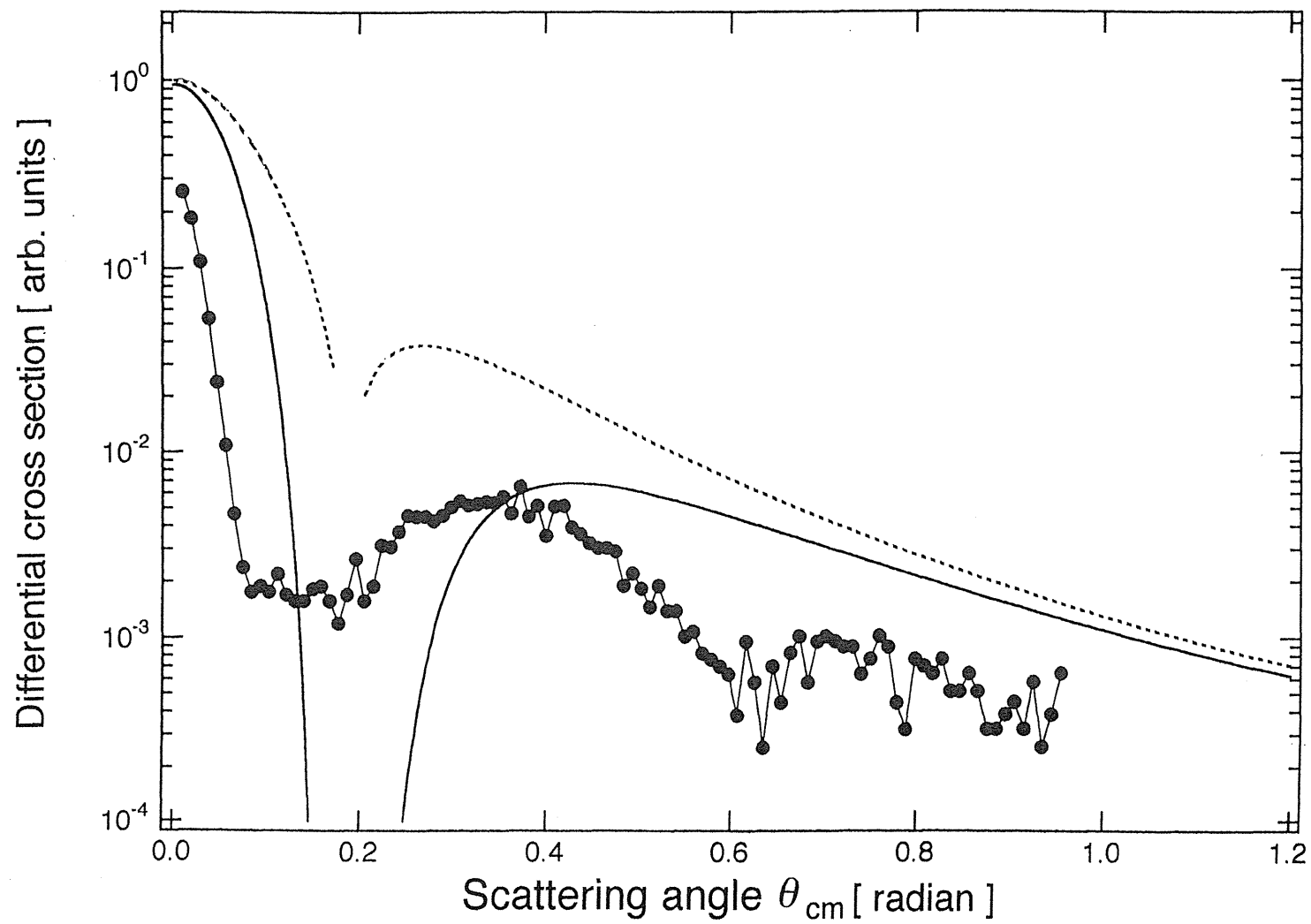
- 図 1 : 交叉ビーム法実験装置図. 電子衝撃型イオン源・Wien-filter 型質量選別器・2 連半球型エネルギー選別器・超音速ノズルビームより構成されている.
- 図 2 : 微分断面積測定に用いた簡単なイオン検出器. 角度限定スリット・3 枚グリッドエネルギーフィルター・二次電子増倍管より構成されている.
- 図 3 : $\text{He}^+ - \text{He}$ 系における弾性散乱微分断面積. 衝突エネルギーは, $E_{\text{lab}} = 10 \text{ eV}$ ($E_{\text{cm}} = 5.0 \text{ eV}$). 重心系に変換した測定結果とReinig とLinder による計算結果を示した.
- 図 4 : $\text{Ar}^{2+} + \text{Ne}$ 系での一電子移行過程により生成された Ar^+ イオンの角度分布. 衝突エネルギーは, (a): $E_{\text{lab}} = 80 \text{ eV}$, (b): $E_{\text{lab}} = 60 \text{ eV}$ および (c): $E_{\text{lab}} = 40 \text{ eV}$.
- 図 5 : $E_{\text{lab}} = 40 \text{ eV}$ の時の $\text{Ar}^{2+} + \text{Ne}$ 系での一電子移行過程の微分断面積. 計算値と実験値の比較.
- 図 6 : 製作した電子ビーム型イオン源(Y's EBIS)の全体図.
- 図 7 : Y's EBIS に用いたソレノイドの作る磁場強度分布.
- 図 8 : Ar 試料をY's EBIS に導入したときに得られた質量スペクトルの例.
- 図 9 : CO 試料をY's EBIS に導入したときに得られた質量スペクトルの例.
- 図 10 : Heil と Sharma により理論的に求められた $\text{O}^{2+} + \text{He}$ 系での一電子移行過程の微分断面積. 衝突エネルギーは, $E_{\text{lab}} = 50 \text{ eV}$ ($E_{\text{cm}} = 10 \text{ eV}$)
- 図 11 : 今回の測定により求められた $\text{O}^{2+} + \text{He}$ 系での一電子移行過程の微分断面積. 衝突エネルギーは, $E_{\text{lab}} = 50 \text{ eV}$ ($E_{\text{cm}} = 10 \text{ eV}$)

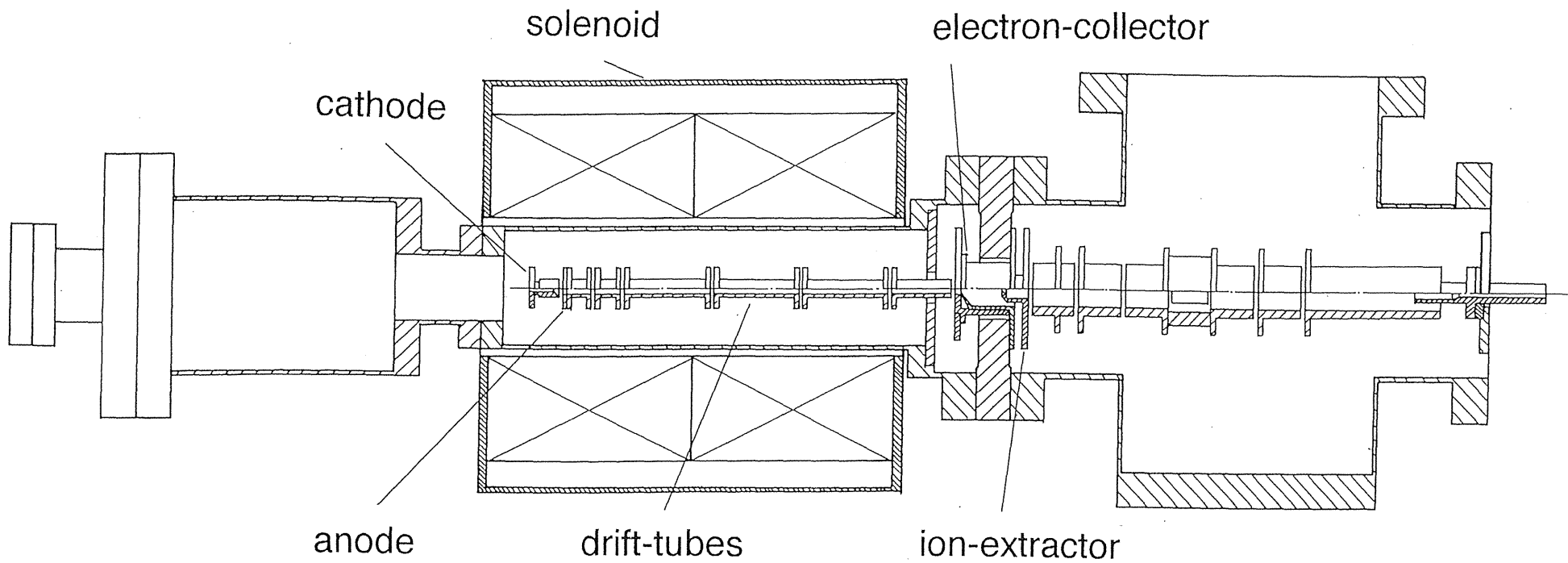


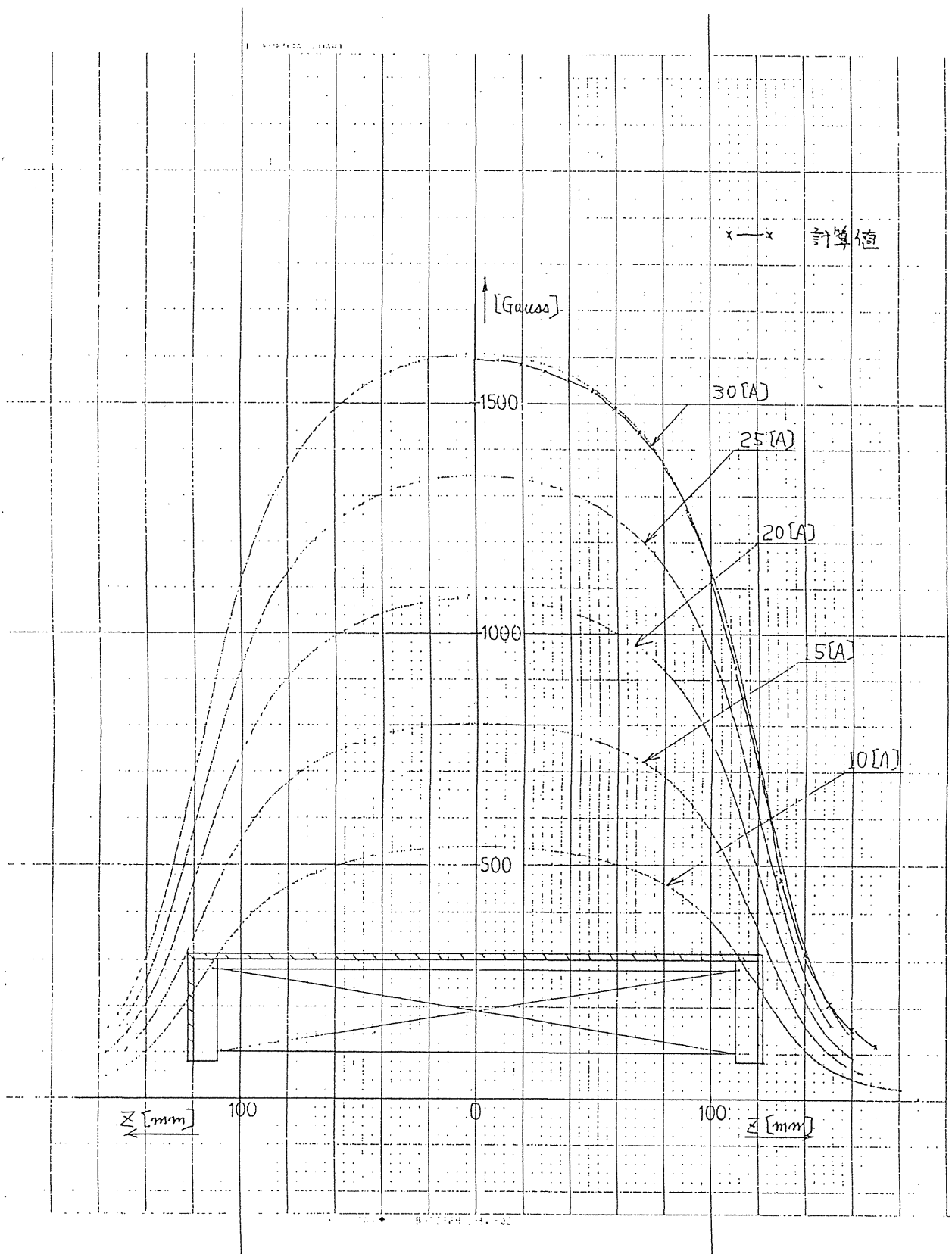


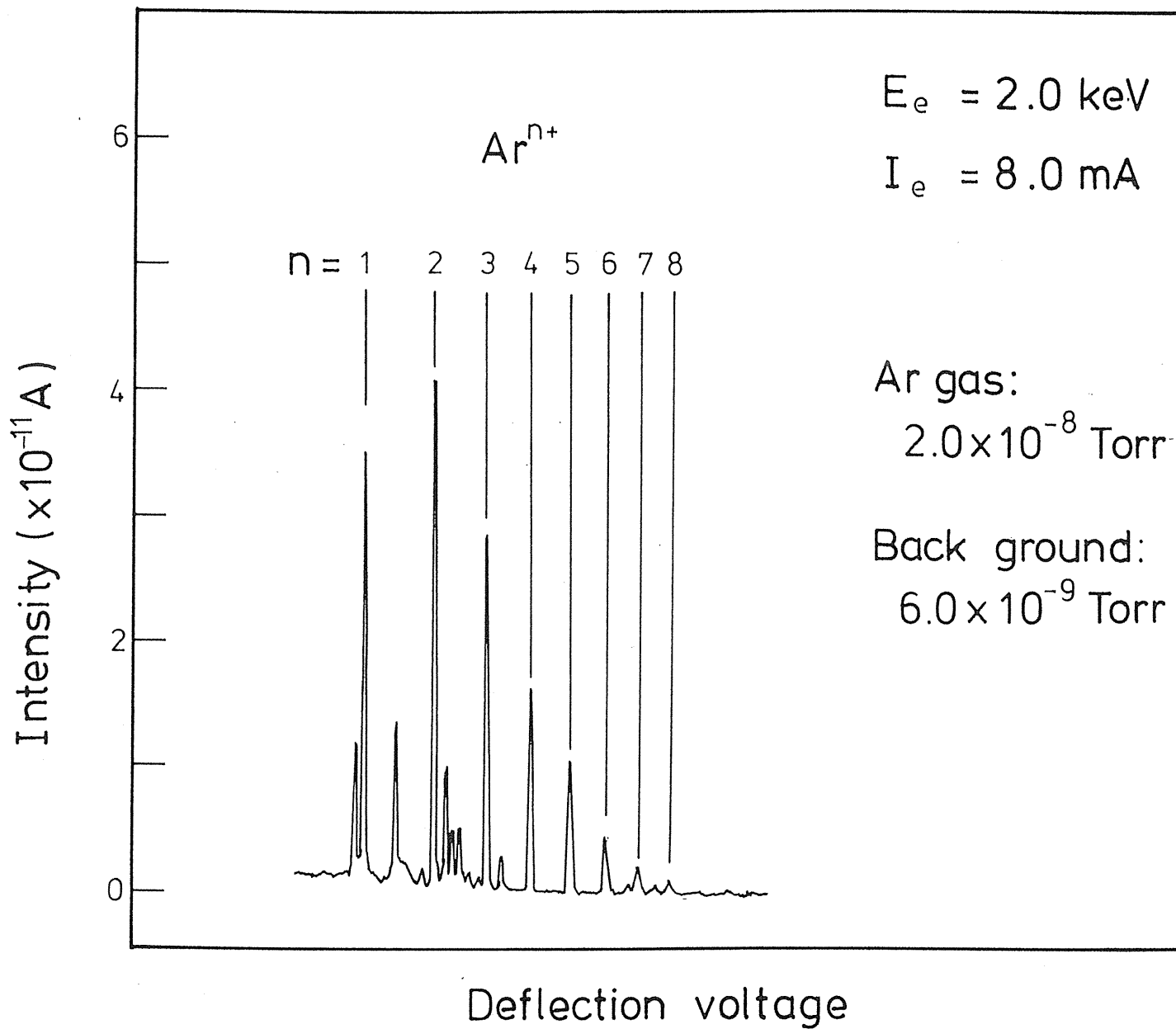


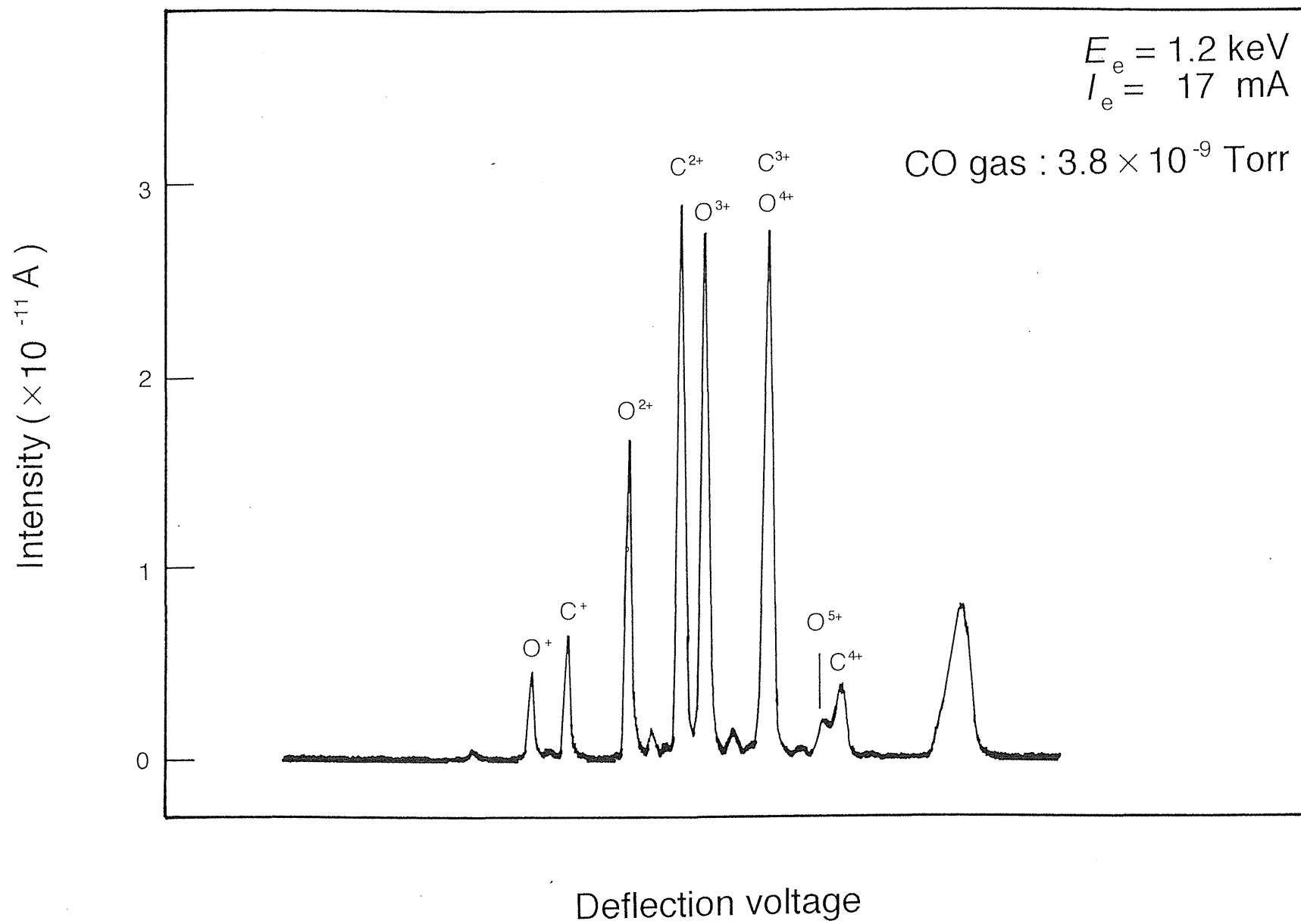












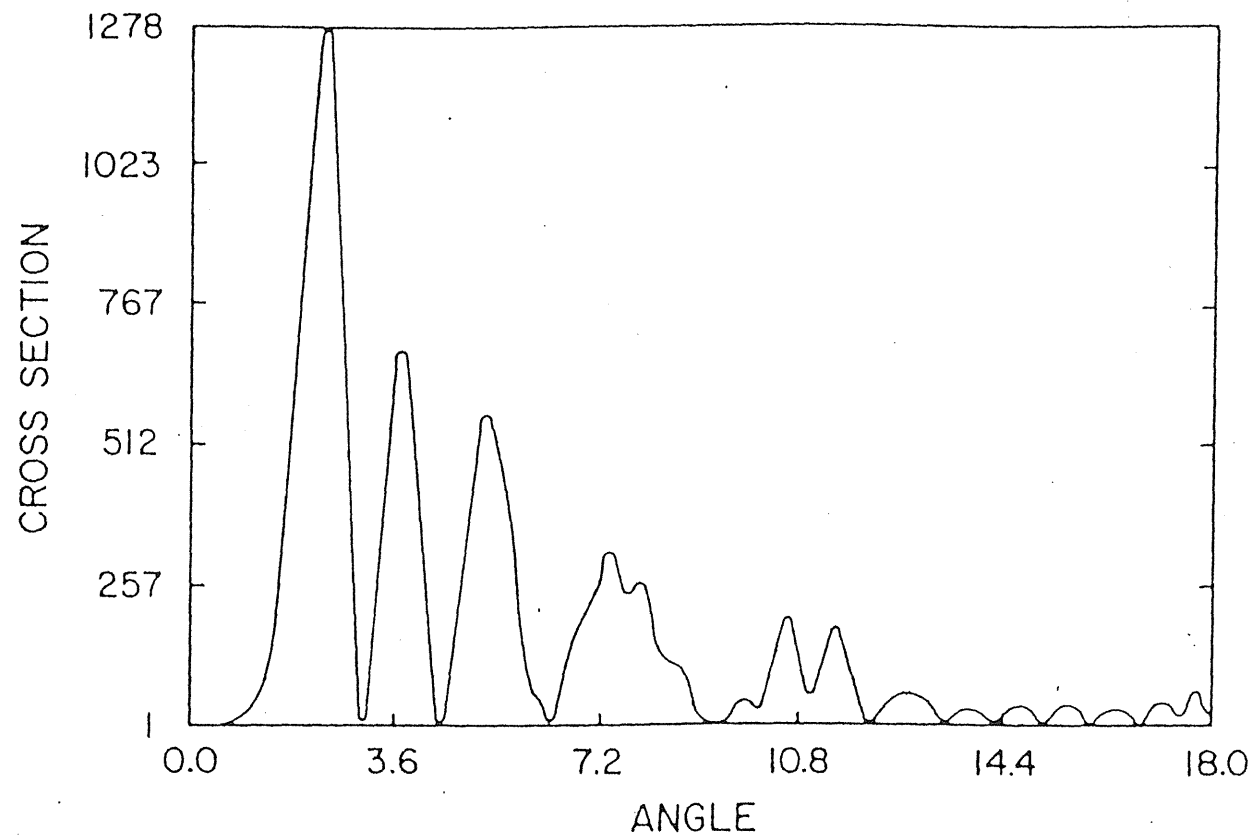


FIG. 2. Differential cross section ($10^{-16} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$) for the production of $\text{O}^+(^2P^\circ) + \text{He}^+$ vs laboratory scattering angle (degrees) at a barycentric collision energy of 10 eV.

